Group Art Unit: 171

Examinar: M. J. Feely



### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: N. TAKANO et al.

Serial No : 09/973,719

Filad

: October 11, 2001

For

: Incombustible resin composition, prepred, Laminated

PLATE, METAL-CLAD LAMINATED PLATE, PRINTED WIRING BOARD

AND MULTI-LAYER PRINTED WIRING BOARD

### DECLARATION OF NOZOMU TAKANO UNDER 37 C.F.R. § 1.131

Commissioner of Paunts and Trademarks
Washington, DC 20231

Siz :

- I, Nozomu Takano, being duly warned, declare that:
- I. I am an inventor of the subject matter claimed in the instant U.S. Appln. No. 09/973,719 ("the '719 application"), which is rejected in the Office Aerian mailed November 21, 2002 ("the rejection").
- 2. The '719 application claims priority of Japanese Appln. No. P2000-313720 ("the JP '720 application"), filed October 13, 2000.
- 3. Prior to September 15, 2000, I was a member of a group that was in passession of the incombustible resin composition that the rejection asserts is disclosed in U.S. Patent No. 6,303,681 to Furukawa et al. I know this because prior to September 15, 2000, the group had reduced to practice and documented an incombustible resin composition comprising a silicone

### P21547.A04

oligomer, a resin material, and a metal hydrate, wherein the metal hydrate comprises at least 20% by weight of the solids of the resin composition.

- 4. Exhibit A, attached hereto, is a copy of a Draft Specification, which was prepared before September 15, 2000.
- 5. Exhibit B, attached hereto, is a copy of the computer "file property" (and an English language translation thereof) bearing a date of creation before September 15, 2000, with respect to the electronic storage of the Draft Specification. Exhibit B is partially reducted with respect to dates.
- 6. The Draft Specification discloses, inter alia, an incombustible resin composition including the same twenty four experimental examples that are disclosed in the IP '720 application.
- 7. Exhibit C, attached hereto, is a partial English language translation of the Draft

  Specification (e.g., not including a translation of the examples, which are the same as those in the

  IP '720 application).
- 8. Exhibit D, attached hereto, is a letter of request ("the letter") for a parent application from our group to our parent attorney. Before September 15, 2000, the letter was forwarded to the attorney with the Draft Specification as an attachment.
- 9. English language translations of certain portions of the letter are set forth adjacent to the corresponding Japanese text. Exhibit D is partially redacted.
- 10. I hereby declars that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and helief are believed to be true, and further that these

### P21547.A04

statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code, and that such willful false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

Nozomu TAKANO

Date

# **EXHIBIT A**

[曹類名] 要約即

[別紀]

(目的) 現境闘和型印刷配数板の対応を目的として、 基板のハロゲンフリー化を図る。

(構成) 無機充填剤として金属水和物を用い、金属水和物の表面をシリコーン蛋合体で処理すことにより、ハロゲンフリーでも疑燃性が確保できかつ耐熱性に優れた積層板用樹脂組成物が得られる。

(選択図) 無し

Draft Specification G-00.00c.

【書類名】 明細書

-\_-

[発明の名称] - 臭楽化合物を含まない製燃性樹脂組成物及びそれを川いた铅層板, 印刷配線(

[特許部状の範囲]

【柳宋項1】 10体損器以上の金属水和物とシリコーン重合体を用いることを特徴とする以業化合物を含まない難燃性過脂和成物及びそれを用いた損弱板、同期配数板。

【耐求項2】 金周水和物として予めシリコーン瓜合体で装面処理した金周水和物を用いることを特徴とする耐求項1に記載の臭素化合物を含まない鍵盤性樹脂和成物及びそれを用いた铅層板、印刷配数板。

【耐求項3】 予めシリコーン国合体を含有する処理浴液に公屈水和物を配合・股件した後、 樹脂組成物を配合することを特徴とする以業化合物を含まない環燃性樹脂相成物及びそれを用いた積層板、印刷配線板が求項1に配確の及業化合物を含まない蝋燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板、印刷配線板。

「翻求項4】 金属本和物として水酸化アルミニウムを含むことを特徴とする都求項1乃至3に配帳の臭業化合物を含まない組織性樹脂組成物及びそれを用いた前府板、印刷配約板。 「翻求項5」 金属本和物として水酸化マグネシウムを含むことを特徴とする間求項1乃至3に配帳の臭業化合物を含まない組燃性樹脂組成物及びそれを用いた前周板、印刷配線板。 「翻求項6] 金属本和物として水酸化カルシウムを含むことを特徴とする創求項1乃至3に配帳の臭業化合物を含まない組燃性樹脂組成物及びそれを用いた前周板、印刷配線板。 【削求項7】 金風水和物が水酸化アルミニウムであることを特徴とする割求項1乃至3 に記載の契案化合物を含まない凝燃性剖脂組成物及びそれを用いた税局板, 印刷配線板。

【が求項8】 水酸化アルミニウムの平均粒径が5μm以下であることを特徴とする請求項1 乃至4,7に記載の臭業化合物を含まない鍵燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配製板。 【節求項9】 表面処理剤となるシリコーン重合体の未端が金属水和物の表面と反応可能なシラノール基を有していることを特徴とする静米項1乃至8に記載の災業化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板、印刷配象板。

【柳来項10】 シリコーンオリゴマのシロキサン做り返し単位が2~100であることを特徴とする請求項1乃至9に記載の具業化合物を含まない選燃性樹脂組成物及びそれを用いた初

图板, 印刷配数板。

-,-

(間求項11] シリコーン連合体がフェニル基を含有していることを特徴とする間求項1乃至10に記載の臭案化合物を含まない塑燃性協脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配線板、 目前求項12] シリコーン重合体の各シロキサン単位に含々1つ以上のフェニル基を含有することを特徴とする請求項1乃至10に記載の臭業化合物を含まない塑燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配線板。

[発明の詳細な説明]

[0001]

[産業上の利用分野]

本発明は、各種電子材料に用いられる臭素化合物を含まない難燃性樹脂組成物及び印刷配線 板用勢の金属箱張り積層板や多層印刷配線板に用いられる積層板・印刷配線板に関する。

[0002]

[従来の技術]

各種電子機器等に用いられる多くの樹脂和成物には、火災等に対する安全性を確保するため に翅燃性が付与されている。鯉燃化には様々な手法が用いられているが、その優れた蝴燃性か らこれまで臭素化合物が広く用いられてきた。しかしながら、地球規模で環境機関に関する問 超童離があまるなか、桃却時等に協食性の臭薬だけでなく毒性の高い化合物を形成する可能性 がある臭素化合物に代わる翅燃システムが検討されている。一方、臭装師品のはんだ材料に関 しても、従来 Sn-Pb 系が主に使用されているが、廃薬処理時等に上壌等を汚染する可能性があ る Pb を用いないはんだ材料の検討も進んでいる。はんだ材料の Pb フリー化に関する報告等を 見ると融点は上昇することが予想されており、これに伴ってリフロー温度も上昇する可能性が こうした状況において、今後の電子材料に用いられる樹脂組成物には、臭業化合物を用いないことと同時にこれまで以上に高い副熱性が要求される。

003)

以業化合物に代わる頻磁化の手法としては、従来からリンや窒素化合物の添加や樹脂骨格への期入等が行われている(特別平11-124489号、特別平11-199753号)。しかしながら、リンや窒素により頻磁性を確保するためにはある程度の引を配合する必要があり、これによって吸水率の増加や耐熱性の低下等を引き起こす問題があった。このため、リンや空これによって吸水率の増加や耐熱性の低下等を引き起こす問題があった。このため、リンや空

素の導入肌の低減を目的に、金属水和物を併用する方法がある。しかしながら、金属水和物は 燃焼時に冷却効果を発現する水を多くトラップしているため、ある程度の肌以上配合すると耐 熱性が急激に低下する問題がある。これは、金属水和物が水をリリースする温度がはんだの浴 微温度よりも低いことに起因しており、今後溶磁温度が更に高くなることが予想されている Pb フリーのはんだではより顕著になると思われる。

[0004]

(発明が解決しようとする概題)

金周水和物を用いて耐熱性を向上させる手法として、水をリリースする温度が比較的高い(約340℃)の水酸化マグキシウムを用いる方法がある(特面平11-181305号)が、水酸化マグキシウムは耐酸性に劣るという問題がある。また、金周水和物の表面にシラン処理を施す方法もあるが(特面平11-181380号、特間平11-217467号)、金周水和物の分散性の向上や引張強度や伸びの向上等を目的としており、シラン処理剤としてはシラン化合物モノマが使用されている。シラン化合物モノマでは、モノマ自体の耐熱性が低いことや金属水和物表面への処理効率が低いことも行り、金周水和物の耐熱性の向上は認められない。

[0002]

[0000]

[概型を解決するための手段]

本発明は、金属水和物とシリコーン正合体を用いて反案化合物を含まない顕燃性樹脂組成物及びこれを用いた積層板、印刷配線板である。以下、本発明について許述する。

[0007]

本発明で用いる金属水和物は特に限定されず、例えば水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム等の従来より頻燃性樹脂組成物に使用されている公知のものを使用することができる。また、これら金属水和物とその他の無機充填剤を併用することもできる。併用する無機充填剤の価類や形状は、特に限定するものではなく、例えば炭酸カルシウム、アルミナ、酸化チタン、マイカ、炭酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウム、シリカ、ガラス短繊維やホウ酸アルミニウムや炭化ケイ素等の各種ウィスカ等が用いられる。

さらに、これらを数銅類併加しても良い。無機先塡剤の配合品は、金属水和物が10体積%以上となる範囲内であれば特に限定するものではない。

## 0.083

本発列におけるシリコーン重合体は、2官能性シロキサン単位(R2S10<sub>1/2</sub>),3官能性シロキサン単位(RS10<sub>1/2</sub>)(式中、Rは有機基であり、シリコーン重合体中のR基は互いに同一であってもよいし、異なっていてもよい。)及び4官能性シロキサン単位(SiO 4/2)から選ばれる少なくとも1種類のシロキサン単位を含有し、重合度は2~7000が分ましい。さらに好ましい重合度は2~100、特に好ましい重合度は2~70であり、未端に水酸基と反応する官能基を1個以上有するものである。ここで、重合度は、その重合体の分子面(低重合版の場合)又はゲルバーミエーションクロマトグラフィーにより標準ポリスチレン若しくはポリエチレングリコールの検配線を利用して測定した数平均分子貼から雰出したものである。

前記のRとしては、炭素数1~4のアルキル法、フェニル基等があるが、金原水和物の耐熱性をより向上させるためにはフェニル基の比率を高くすることが好ましい。水酸基と反応する官能基としては、シラノール基、炭素数1~4のアルコキシル基、炭素数1~4のアシルオキシ基、塩素等の臭素以外のハロゲン等がある。

[0000]

本発明おけるシリコーン肌合体は、一般式(1)

(化1)

R'nSiX4-n (1)

(式中Xは、塩茶等の臭米以外のハロゲン又は一〇Rを示し、ここで、Rは炭茶数1~4のアルキル基、レキル基、炭米数1~4のアルキルカルポニル基を示し、R′は炭茶数1~4のアルキル基、フェニル基等の有機基、nは0~2の整数を意味する)で表されるシラン化合物を加水分解、加略合させて得ることができる。

[0010]

前紀一般式(1)で表されるシラン化合物は、具体的には

(4k2)

Si (OCH3) 4. Si (OC2H5) 4.

Si (OC, H,), Si (OC, H,)

等のテトラアルコキシシランなどの4官能性シラン化合物(以下、シラン化合物における官能性とは、解合反応性の官能基を有することを意味する。)、

### (化3)

H<sub>3</sub>CSi (OCH<sub>3</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>2</sub>Si (OCH<sub>3</sub>) ,, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>Si (OCH<sub>3</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OCH<sub>3</sub>) ,, H<sub>3</sub>CSi (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) ,, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>Si (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) ,, H<sub>3</sub>CSi (OC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>7</sub>) ,, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>7</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>7</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>5</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,, H<sub>5</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,, H<sub>9</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,, H<sub>7</sub>C<sub>3</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,, H<sub>9</sub>C<sub>4</sub>Si (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) ,,

### (4)

PhSi (OCH<sub>3</sub>) 3, PhSi (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) 3, PhSi (OC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>) 3, PhSi (OC<sub>4</sub>H<sub>3</sub>) 3 (ただし、Phはフェニル基を示す。以下同様)

## (**/**ES)

巻のフェニルトリアルコキシシラン、

(H,CCOO), SICH, (H,CCOO), SIC, H, (H,CCOO), SIC, H, (H,CCOO), SIC, H,

### (46)

苧のモノアルキルトリアシルオキシシラン

Cl,SiCH, Cl,SiC,H,
Cl,SiC,H, Cl,SiC,H,

(16.7.)

(H,C), S i (OCH,), (H,C,), S i (OCH3),

**夢のモノアルキルトリハロゲノシランなどの3官能性シラン化合物。** 

(H,C<sub>1</sub>) <sub>1</sub>S i (OCH<sub>3</sub>) <sub>2</sub>, (H<sub>3</sub>C<sub>4</sub>) <sub>1</sub>S i (OCH<sub>3</sub>) <sub>2</sub>, (H3C) <sub>2</sub>S i (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) <sub>3</sub>, (H<sub>3</sub>C<sub>2</sub>) <sub>1</sub>S i (OC<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) <sub>2</sub>,

(H,C<sub>1</sub>), Si (OC<sub>2</sub>H<sub>1</sub>), (H<sub>9</sub>C<sub>4</sub>), Si (OC<sub>2</sub>H<sub>1</sub>), (H<sub>1</sub>C), Si (OC<sub>2</sub>H<sub>1</sub>), (H<sub>1</sub>C), Si (OC<sub>3</sub>H<sub>1</sub>), (H<sub>1</sub>C), Si (OC<sub>3</sub>H<sub>1</sub>),

 $(H_1,C_3)$  , S i  $(OC_3H_7)$  ,  $(H_9C_4)$  , S i  $(OC_3H_7)$  ,

(H<sub>1</sub>C) <sub>2</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) <sub>2</sub>, (H<sub>1</sub>C<sub>1</sub>) <sub>3</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) <sub>2</sub>, (H<sub>7</sub>C<sub>1</sub>) <sub>2</sub>S i (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) <sub>2</sub>,

勢のジアルキルジアルコキシシラン、

(48)

Ph2Si (OCH,) , Ph,Si (OC,H,)

等のジフェニルジアルコキシシラン、

(K3)

(H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (CH<sub>3</sub>) <sub>1</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) <sub>1</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO) ,S i (C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>) <sub>1</sub>

乾のジアルキルジアシルオキシシラン,

[(12) 0]

C1,Si (CH,) , C1,Si (C,H,) ,

C1,S1 (C,H,) , C1,S1 (C,H9) ,

**尊のアルキルジハロゲノシランなどの2官能性シラン化合物がある。** 

.[0011]

本発明に用いられる前記一般式(1)で表されるシラン化合物としては、4官能性シラン化合物又は3官能性シラン化合物、2官能性シラン化合物のいずれか若しくはその混合物が適宜使用される。 特に耐熱性向上のためには、フェニル基を有するフェニルトリアルコキシシラン化合物やジフェニルジアルコキシシラン化合物を用いることが好ましく、これら化合物の使用品としては、総シラン化合物に対して好ましくは、5~100モル%の割合で使用され、特に好ましくは、50~100モル%の割合で使用され、特に好ましくは、50~100モル%の割合で使用され、特に

[0012]

本発明におけるシリコーン組合体は、前記した一般式(1)で表されるシラン化合物を加水分解、重結合して製造されるが、このとき、触媒としては、塩酸、硫酸、リン酸、硝酸、フッ酸等の無機酸、シュウ酸、マレイン酸、スルホン酸、半酸等の有機酸を使用することが好ましく、アンモニア、トリメチルアンモニウムなどの塩基性触媒を用いることもできる。これら触

媒は、一般式(1)で表されるシラン化合物の間に応じて適当間川いられるが、好適には一般式(1)で表されるシラン化合物1モルに対し0.001~1.0モルの範囲で用いられる。 [0013]

ď

また、この反応に除して、水が存在させられる。水の鼠も適宜状められるが、多すぎる場合には盤布液の保存安定性が低下するなどの問題があるので、水の鼠は、一般式 (1) で安されるシラン化合物が有する加水分解性基 (例えばアルコキシル基等) 1モルに対して、0~5モルが好ましく、0、5~2モルの範囲とすることがより好ましい。

0014]

また、上記の加水分解・近船合は、溶媒中で行うことが近ましい。溶媒としては特に限定するものではい。シリコーン近合体の反応は、シラン化合物と他媒、水、溶媒を適宜配合・規作して得られるが、その際のシラン化合物の遺度や反応温度、反応時間等は特に限定するもではよ。

[0015]

これらシリコーン直合体は、金属水和物の表面を扱って金属水和物が持っている水をリリースする温度を向上させるはたらきがある。通常、金属水和物が水をリリースする温度は、金属水和物を単独で加熱減量や示差走査熱量計、熱分解ガスクロマトグラフィ等で調定することができる。水をリリースする温度は金属水和物の種類や形状等により大きく異なるが、金属水和物として水酸化アルミニウムを用いた場合には、上記シリコーン重合体で処理することにより数でから数十で高くなる。

[0016]

また本発明では、シリコーン正合体以外に各種カップリング剤総を併用してもよい。カップリング剤としてはシラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤等があり、シラン系カップリング剤としては、一般にエポキシシラン系、アミノシラン系、カチオニックシラン系、ピニルシラン系、アクリルシラン系、メルカプトシラン系及びこれらの複合系等がある。

0017

本発明で用いる樹脂は臭染を含まないものであれば特に限定されず, 例えばエボキシ樹脂系, ポリイミド樹脂系, トリアジン樹脂系, フェノール樹脂系, メラミン樹脂系, これら樹脂の変 性系等が用いられる。また, これらの樹脂は2種類以上を併用してもよく, 必要に応じて各種 硬化剤, 硬化促進剤等を使用し, これらを溶剤溶液として配合してもかまわない。

# [0018]

樹脂を用いる場合には、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニル スルフォン,無水フタル酸,無水ピロメリット酸,フェノールノボラックやクレゾールノボラ ック等の多官能性フェノールやをあげることができる。これら硬化剤は同種類かを併用するこ とも可能である。促進剤の租類や配合監は特に限定するものではなく,例えばイミダゾール系 化合物,有機リン系化合物,第3級アミン,第4級アンモニウム塩等が用いられ,2種類以上 硬化剤としては,従来公知の種々のものを使用することができ,例えば樹脂としてエポキシ を併用してもよい。

## [0.019]

これら樹脂材料及び金周水和物,シリコーン重合体等を希釈してワニス化するためにしばし ば溶剤が用いられる。この溶剤は特に限定はなく,例えばアセトン,メチルエチルケトン,ト ルエン,キシレン,メチルイソブチルケトン,群骸エチル,エチレングリコールモノメチルエ ーテル、N,Nージメチルホルムアミド,メタノール,エタノール等があり,これらは何価類 かを程合してもよい。また,ワニスの間形分数度は特に削限はなく,樹脂粗成や無機充填剤の ⑪頼及び配合肌等により適宜変更できるが,50重肌%~85重肌%の範囲が好ましい。50 **重量名より低いとワニス粘度が低く、プリプレグの樹脂分が低くなりすぎ、85重量%より高** いとワニスの増枯等によりプリプレグの外観等が落しく低下しやすい。

## [0020]

ワニス化する際の金属水和物の装面処型方法は特に限定されず,上記シリコーン重合体等を 予め処理した金属水和物を使用したり,ワニス化する際に樹脂や金属水和物と一緒に配合した り,予めシリコーン重合体勢が入っている処型液中に金属水和物を入れて視体処理後,そのま まワニス化してもかまわない。

## [0021]

前記各成分を配合して得たワニスは,基材に含没させ,乾燥炉中で80℃~200℃の範囲 で乾燥させることにより、印刷配鉄板用プリプレグを得る。基材としては、金周箔張り積層板 や多周印刷配線板を毀造する欧に川いられるものであれば特に制限されないが,通常総布や不 ポロン,シリカアルミナガラス,シリカガラス,チラノ,炭化ケイ茶,窒化ケイ茶,ジルコニ ア等の無機機維やアラミド,ポリエーテルエーテルケトン,ポリエーテルイミド,ポリエーテ 機布等の繊維基材が用いられる。繊維基材としては、たとえばガラス、アルミナ、アスペスト、

ルサルフォン,カーボン,セルロース等の有機繊維等及びこれらの湿抄系があり,特にガラス 繊維の緻布が好ましく用いられる。

-;-

本発明で用いるブリブレグは,150℃~200℃,1.0MPa~8.0MPa程度の範 **聞で加熱加圧して金属張積層板や多層印刷配線板を製造することに用いられる。** 

# [0023]

### (作川)

とした場合に,臭案化合物を使用しない樹脂組成物を用いても頻燃性が発現でき,金属水和物 以上で述べた本発明によれば,金属水和物とシリコーン重合体を併用することにより積層板 を配合したことによる耐熱性の低下も抑えることが可能となる。

# [0024]

### [灾施例]

以下、本発明の実施例について説明する。

## [0025]

### 实施例1

**規件装置,コンデンサ及び温度計を備えたガラスフラスコに,テトラメトキシシランを40** 8, メタノールを93g配合した裕液に、酢酸を0. 47g,蒸削水を18. 9g配合後50℃ で8時間脱搾し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返 し単位の平均は20であった。これにメチルエチルケトンを加えて、関形分25重畳%のシリコ -ン亚合体溶液を作製した。 このシリコーン蛋合体溶液を用いて,以下に示す樹脂及び金属水和物とメチルエチルケトン を加えて関形分70重盟%のワニスを作毀した。

ピスフェノールA型エポキシ樹脂

(油化シェルエポキシ製 邸1001, エポキシ当原:466)

オルソクレゾールノボラック型エボキシ樹脂

(住友化学製 ESCN-195, エポキシ当頭: 195)

5月日第 ジシアンジアミド 0.5重品幣 2 - エチルー4 - メチルイミダゾール

155瓜品幣 水酸化アルミニウム

-10-

(住友化学製 CL310)

シリコーン重合体溶液 (25重原%)

4 正显部

[0026]

实施例2

実施例1と同様に、トリメトキシメチルシランを40g,メタノールを93g配合した溶液に、 脂酸を0.53g,蒸倒水を15.8g配合後50℃で8時間放作し、シリコーン十号体を合成した。得られたシリコーン直合体のシロキサン殻り返し単位の平均は15であった。これにメチルエチルケトンを加えて、作製した固修分25重畳%のシリコーン重合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0027]

实施例3

実施例1と同様に、ジメトキシジメチルシランを20g、テトラメトキシシランを25g、メタノールを105g配合した溶液に、酢酸を0.60g、蒸倒水を17.8g配合後50℃で8時間投井し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン類り返し単位の平均は30であった。これにメチルエチルケトンを加えて作戦した囧形分25重畳%のシリコーン正合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作戦した。

[0028]

实施例4

実施例1と同様に、トリメトキシメチルシランを20g、テトラメトキシシランを22g、メタノールを98g配合した搭被に、酢酸を0.52g、蒸留水を18.3g配合後50℃で8時間段件し、シリコーン頂合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン線り返し単位の平均は25であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固修分25重配%のシリコーン直合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0029]

实施例5

実施的1と同様に、ジメトキシジメチルシランを10g,トリメトキシメチルシランを10g,テトラメトキシシランを20g,メタノールを93g配合した裕裕に、耐酸を0.52g,蒸留水を15.5g配合後50℃で8時間促作し、シリコーン頂合体を合成した。得られたシリコーン団合体を6成した。得られたシリコーン国合体のシロキサン繰り返し単位の平均は23であった。これにメチルエチルケトンを加えて

作製した固形分25近億%のシリコーン近合体溶液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製し

₹.

--:-

[0030]

英施例6

実施例1と同様に、テトラエトキシンランを40g、メタノールを93g配合した脊液に、作機を0.34g、蒸倒水を13.8g配合後50℃で8時間脱作し、シリコーン近合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は19であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固修分25重開%のシリコーン重合体落液を用いて、実施例1と同様にワエスを作製した。

[0031]

実施例7

実施例1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.20g、蒸配水を6.0g配合後25℃で1時間低作し、シリコーン近合体を合成した。 ゆられたシリコーン近合体のシロキサン繰り返し単位の平均は2であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重散%のシリコーン近合体溶液を用いて、実施例1と同様にフニスを作戦した。

[0032]

实施例8

実施例7と同様に、ジフェニルジメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した常裕に、酢酸を0.20g、蒸悩水を6.0g配合後50℃で8時間度件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン様0返し単位の平均は8であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重鼠%のシリコーン重合体溶液の1.3%例1と同様にワニスを作製した。

[0033]

状态型9

現施例1と同様に、フェニルトリメトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.24g、蒸倒水を11.0g配合後50℃で8時間脱作し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は12であった。これに

メチルエチルケトンを加えて作取した間形分25面型%のシリコーン肌合体溶液を用いて,実施例1と同様にワニスを作取した。

--\_:

[0034]

実施例10

実施例1と同様に、ジフェニルジエトキシシランを40g, メタノールを10g配合した潜液に、酢酸を0.18g, 蒸留水を5.5g配合後50℃で8時間抵炸し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は10であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重原%のシリコーン重合体路被を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0035]

灾施例11

実施例1と同様に、フェニルトリエトキシシランを40g、メタノールを10g配合した溶液に、酢酸を0、20g、蒸倒水を9、0g配合後50℃で8時間境件し、シリコーン面合体を合成した。得られたシリコーン面合体のシロキサン繰り返し単位の平均は9であった。これにメチルエチルケトンを加えて作収した間形分25重肌%のシリコーン面合体溶液を用いて、実施例1と同様にフニスを作収した。

[0036]

奖施例12

実施倒1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを20g、テトラメトキシシランを20g, メタノールを10g配合した裕液に、酢酸を0.25g、蒸留水を12.5g配合後50℃で8時間度件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は1.5であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固修分25重監%のシリコーン更合体裕液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0037]

实施例13

実施例1と同様に,ジフェニルジメトキシシランを20g,ジメトキシジメチルシラン20g,メタノールを10g配合した搭被に,酢酸を0.28g,蒸船水を9.0g配合後50で電時間模拌し,シリコーン正合体を合成した。得られたシリコーン正合体のシロキサン繰り返し単位

の平均は8であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した関形分25重肌%のシリコーン<u>面合体</u>裕波を用いて、災施例1と同様にワニスを作製した。

[0038]

実施例14

実施例1と同様に,ジフェニルジメトキシシランを20g,トリメトキシメチルシラン20g,メタノールを10g配合した幹液に,酢酸を0.25g,蒸쮬水を11.0g配合後50℃で8時間撹拌し,シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン直合体のシロキサン松り返し単位の平均は10であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25重配%のシリコーン血合体溶液を用いて,実施例1と同様にフニスを作製した。

[0039]

实施例15

実施倒1と同様に、ジフェニルジメトキシシランを20g,フェニルトリメトキシシラン20g,メカノールを10g配合した溶液に、酢酸を0.30g,蒸粉水を5.9g配合後50℃で8時間現件し、シリコーン重合体を合成した。得られたシリコーン重合体のシロキサン繰り返し単位の平均は6であった。これにメチルエチルケトンを加えて作製した図形分25重型器のシリコーン重合体溶液を加いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0040]

实施例16

実施倒7で得られたシリコーン重合体合成液に、シランカップリング剤としてャーグリシドキシプロピルトリメトキシンラン(商品名:A-187、日本コニカー・(株) 製) とメチルエチルケトンを加えて作製した固形分25.近間%(シリコーン近合体:A-187=50;50)のシリコーン重合体液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0041]

実施例17

実施例7で得られたシリコーン近合体合成液に、チタネートカップリング剤としてイソプロビルトリス (ジオクチルパイロホスフェート) チタネート (所品名: KR46B, 味の業 (株) 製) とメチルエチルケトンを加えて作製した、固形分25 重品% (シリコーン重合体: S2-6032-50:50) のシリコーン重合体潜液を用いて、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0042]

实施例18

-,-

金属水和物として水酸化アルミニウムの代わりに水酸化マグネシウムを用いた以外は,実施例7と同様にワニスを作製した。

[0043]

实施例19

金周水和物として水像化アルミニウムの代わりに水酸化カルシウムを用いた以外は, 実施例7 と同様にワニスを作毀した。

[0044]

実施例20

金属水和物として水酸化アルミニウム100重型部と水酸化マグネシウム55重量部を用いた以外は、実施例7と同様にワニスを作製した。

[0045]

災施例21

エポキシ樹脂をしてオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂を100重 鼠部(住友化学製 ESCN-195, エポキシ当鼠:195)としジシアンジアミドの代わりにフェノールノボラック樹脂を55重鼠部(日立化成工業製 HP-850M, 水酸基当鼠:108)とした以外は、攻施例7と同様にワニスを作製した。

[0046]

实施例22

水酸化アルミニウムの配合阻を230重鼠部とした以外は、実施例7と同様にワニスを作数

[0047]

灾施例23

実施的7で得られたシリコーン近合体にメタノールを加えて作戦した固修分3重畳%のシリコーン近合体処理液に実施例21と同頃の水酸化アルミニウムを入れて25℃で1時間機体処理後、80℃で3時間乾燥させたシリコーン近合体処理水酸化アルミニウムを用いて,実施例21と同様にワニスを作戦した。

[0048]

实施例24

実施例7で得られたシリコーン瓜合体にメチルエチルケトンを加えて作致した同形分5 瓜 園%のシリコーン瓜合体処理被に実施例2 1 と同間の水酸化アルミニウムを入れて25 でで1時間脱掉処理後、その処理裕液を用いて実施例2 1 と同様にワニスを作致した。

[0049]

比較例1

実施例1のワニスにシリコーン重合体溶液を配合せずに、ワニスを作製した。

[0000]

比較例2

奥施例1のシリコーン重合体の代わりにィーグリシドキシブロビルトリメトキシシラン (消品名:A-187, 日本ユニカー (株) 製)を1重頂部とした以外は、実施例1と同様にワニスを作製した。

[0051]

比較何3

実施倒1のシリコーン近合体の代わりにイソプロピルトリス (ジオクチルパイロホスフェート) チタネート (商品名: KR46B, 味の茶 (株) 製)を1. 近記部とした以外は、災陥例1.と同様にワニスを作製した。

[0052]

比較例4

実施例7のシリコーン重合体の代わりに、ジフェニルジメトキシシラン化合物を1.頂頭部配合した以外は、実施例7と同様にワニスを作奨した。

[0053]

実施例1~24及び比較例1~4で作製したワニスを厚さ約0. 1mmのガラスが(#2116, E-ガラス)に含複後. 150℃で3~10分加熱乾燥して樹脂分43重鼠%のブリブレグを得た。これらプリブレグ4枚を重ね,その両側に厚みが18 mmの網箱を重ね,170℃,90分,4.0MPaのプレス条件で両面網張積層板を作製した。

[0054]

得られた両面網張挝恩板について、蜒燃灶、耐熱性、加熱減損を評価した。その結果を表1 に示す。

[0055]

試験方法は以下の通りである。

**麹烙性:金面エッチングした稻層板を用いて, UL94規格の重直試験により評価した。** 

**耐熱性:50mm×50mmに切断した両面納張机凮板を用いて,260℃及び288℃の荷** 

掛はんだにフローとした際に積層板がふくれるまでの時間を測定した。

(0056)

以上の結果から、次のことが分かる。

**契絡例1~24は,UL94V-0を達成し,260℃の耐熱性及び288℃での耐熱性が** 

良好である。

[0057]

[死明の効果]

本発明の樹脂組成物により作製した積層板は,臭素を含有せずに頻燃性を発現し,かつ優れ

た耐熱性を有する。

表 積層板の特性評価結果

| 項目        | -    | 実施例1 | 実施例2 実施例3 |      | 実施例4 | 施例4 実施例5 | 実施例6 | 実施例6 実施例7 | 実施例8 | 実施例9 | 実施例9 実施例10 実施例11 実施例12 実施例13 | 実施例11 | 実施例12 | 実施例13 |
|-----------|------|------|-----------|------|------|----------|------|-----------|------|------|------------------------------|-------|-------|-------|
| 金属水和物量    | %10A | 43   | 43        | 43   | 43   | 43       | 43   | 43        | 43   | 43   | 43                           | 43    | 43    | 43    |
| 難燃性       | 最大   | 7.0  | 8.3       | 8.0  | 8.5  | 8.2      | 7.6  | 4.8       | 3.9  | 5.0  | 5.1                          | 6.0   | 5.5   | 6.5   |
| (8)       | 本均   | 4.6  | 4.9       | 4.9  | 4.7  | 4.0      | 4.8  | 3.3       | 2.4  | 4.2  | 3.0                          | 4.3   | 3.9   | 4.5   |
| 耐熱性       | 260% | >300 | >300      | >300 | >300 | >300     | >300 | >300      | >300 | >300 | >300                         | >300  | >300  | >300  |
| (s, 70-k) | 2887 | >300 | >300      | >300 | >300 | >300     | >300 | >300      | >300 | >300 | >300                         | >300  | >300  | >300  |
|           |      |      |           |      |      |          |      |           |      |      |                              |       |       |       |

| 項目        |      | 実施例14 実施( | 実施例15 | 例15 実施例16 実施例17 | 実施例17 | 実施例18 実施例19 | 実施例19 | 実施例20 | 実施例21 | 実施例21 実施例22 実施例23 実施例24 | 実施例23 | 実施例24 |
|-----------|------|-----------|-------|-----------------|-------|-------------|-------|-------|-------|-------------------------|-------|-------|
| 金属水和物量    | %10v | 43        | 43    | 43              | 43    | 44          | 44    | 43    | 43    | 43                      | 43    | 43    |
| 難燃性       | 最大   | 6.0       | 6.3   | 4.9             | 5.0   | 4.0         | 7.5   | 4.3   | 4.1   | 3.0                     | 4.6   | 4.1   |
| (s)       | 平均   | 4.1       | 4.2   | 2.8             | 3.0   | 2.2         | 4.9   | 2.9   | 2.8   | 1.5                     | 3.0   | 2.6   |
| 耐熱性       | 209Z | >300      | >300  | >300            | >300  | >300        | >300  | >300  | >300  | >300                    | >300  | >300  |
| (s, 70-k) | 288C | >300      | >300  | >300            | >300  | >300        | >300  | >300  | >300  | >300                    | >300  | >300  |

| 項目     |      | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 比較例4 | 比較例5 |
|--------|------|------|------|------|------|------|
| 金属水和物量 | %10v | 43   | 43   | 43   | 43   | 6    |
| 難燃性    | 最大   | 15.5 | 13.6 | 14.8 | 11.5 | 全焼   |
| (8)    | 年本   | 8.6  | 8.3  | 9.0  | 6.0  | 全焼   |

|           |       |     |     |     |     | 1,   |
|-----------|-------|-----|-----|-----|-----|------|
| 耐熱性       | 2002  | 150 | 180 | 144 | 193 | >300 |
| (s, 7u-k) | 288°C | 25  | 47  | 39  | 55  | >300 |

試験方法は以下の通りである。

**斑烙性:全両エッチングした紅層板を用いて,UL94段格の重直試験により評価した。** 

耐熱性:50mm×50mmに切断した両面解張粒層板を用いて,260℃及び288℃の脊機はんだにフローとした際に前層板がふくれるまでの時間を調定した。

[0056]

以上の結果から、次のことが分かる。

**災施例1~24は,UL94V-0を遠成し,260℃の耐熱性及び288℃での耐熱性が** 

以好である。

[0057]

[発明の効果]

水発明の樹脂和成物により作製した初層板は,以素を含有せずに顕燃性を発現し,かつ優れた副熱性を有する。

表 積層板の特性評価結果

| 項目        |       | 実施例1 | 実施例1 実施例2 実施例3 | 実施例3 | 実施例4 | 面例4 実施例5 実施例6 実施例7 | 実施例6 | 実施例7 | 実施例8 | 実施例9 | 実施例10 | 実施例口 | 実施例8 実施例9 実施例10 実施例11 実施例12 実施例13 | 実施例13 |
|-----------|-------|------|----------------|------|------|--------------------|------|------|------|------|-------|------|-----------------------------------|-------|
| 金属水和物量    | v01%  | 43   | 43             | 43   | 43   | 43                 | 43   | 43   | 43   | 43   | 43    | 43   | 43                                | 43 -  |
| 難燃性       | 最大    | 7.0  | 8.3            | 8.0  | 8.5  | 8.2                | 7.6  | 4.8  | 3.9  | 5.0  | 5.1   | 6.0  | 5.5                               | 6.5   |
| (8)       | 平均    | 4.6  | 4.9            | 4.9  | 4.7  | 4.0                | 4.8  | 3.3  | 2.4  | 4.2  | 3.0   | 4.3  | 3.9                               | 4.5   |
| 耐熱性       | 260°C | >300 | >300           | >300 | >300 | >300               | >300 | >300 | >300 | >300 | >300  | >300 | >300                              | >300  |
| (s, 70-k) | 288°C | >300 | >300           | >300 | >300 | >300               | >300 | >300 | >300 | >300 | >300  | >300 | >300                              | >300  |

| 項目        |      | 実施例14 | 実施例14 実施例15 実施例16 | 実施例16 | 実施例17 | 実施例18 | 実施例19 | 実施例20 | 実施例21 | 実施例18 実施例19 実施例20 実施例21 実施例22 | 実施例23 実施例24 | 実施例24 |
|-----------|------|-------|-------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------------------------------|-------------|-------|
| 金属水和物量    | vo1% | 43    | 43                | 43    | 43    | 44    | 44    | 43    | 43    | 43                            | 43          | 43    |
| 難燃性       | 最大   | 6.0   | 6.3               | 4.9   | 5.0   | 4.0   | 7.5   | 4.3   | 4.1   | 3.0                           | 4.6         | 4.1   |
| (s)       | 本均   | 4.1   | 4.2               | 2.8   | 3.0   | 2.2   | 4.9   | 2.9   | 2.8   | 1.5                           | 3.0         | 2.6   |
| 耐熱性       | 2002 | >300  | >300              | >300  | >300  | >300  | >300  | >300  | >300  | >300                          | >300        | >300  |
| (s, 70-k) | 288C | >300  | >300              | >300  | >300  | >300  | >300  | >300  | >300  | >300                          | >300        | >300  |

| 項目     |      | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 比較例4 | 比較例5 |
|--------|------|------|------|------|------|------|
| 金属水和物量 | %10A | 43   | 43   | 43   | 43   | 6    |
| 難燃性    | 最大   | 15.5 | 13.6 | 14.8 | 11.5 | 全焼   |
| (s)    | 年五   | 8.6  | 8.3  | 9.0  | 6.0  | 全焼   |

| 耐熱性       | 2,09Z | 150 | 180 | 144 | 193 | >300 |
|-----------|-------|-----|-----|-----|-----|------|
| (s, 70-k) | 288°C | 25  | 47  | 39  | 55  | >300 |



# **EXHIBIT B**

APR 24 mm

キャンセル ファイルの情報】ファイルの概要【詳細情報】ファイルの情成】ユーザー設定】 475 12655 12691 13148 ð 115:11:00 J 200900 14:16:38 03年2月20日 16:27:48 文字銭 スペースを含む) 楪 1375分 距距 **非细情机**0名前 ဓ္တ G-Oa.doc JOKF. 1281 1301 1321 1311 1 CHARLESTEEL 1821 [共組情報(公) 作成日時,更新日時 *ኮካ*ቲአፀ፡ EPIRIE 14: 改訂番号 偏製作問 更新者: 三律译 とを特徴とする情求項1に記載の臭業化含物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた値( 【発明の名作】①臭柰化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配線 【情求項1】 🖺 1 0 体債%以上の金属水和物とシリコーン重合体を用いることを特徴化する奥 **樹脂組成物を配合することを特徴とする臭素化合物を含まない 繋然性樹脂組成物及びそれを用** いた情層板,印刷配線板指求項1に配載の臭素化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを [精球項4]…金属水和物として水酸化アルミニウムを含むことを特徴とする諸球項1乃至3 【情球項5】… 金精水和物として水酸化マグネシウムを含むことを特徴とする情求項1乃至3 [播球項 6] … 金厢水和物として水酸化カルシウムを含むことを特徴とする諸球項1乃至3に 【請求項3】:・子めシリコーン重合体を含有する処理溶液に金屑水和物を配合;損拌した後。 に記載の臭葉化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた債價板,印刷配線板。→ に記載の臭葉化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた循層板,印刷配線板。 4 記載の臭素化合物を含まない難燃性樹脂組成物及びそれを用いた積層板,印刷配線板。♪ 奈化合物を含まない繋燃性樹脂組成物及びそれを用いた債層板,印刷配線板。 ファイル(E) 編集(E) 表示(公) 挿入中 書式(Q) ツール(C) 野線(A) ウインドウ(M) ヘルブ(B) L 8 12 141 161 181 101 1121 111 1161 1191 1201 1211 1211 1261 U·A A X·厚电 · B I ٠ 10 用いた積層板,印刷配線板。ジ [書類名] []明細書。 【特件情求の範囲】。 厚板, 印刷配棉板。7 36文字×24 - MS 明朝 2 X-9 

G-0a. doc Property

File Information

File Outline

Detailed Information

File Construction

User Set Up

Preparation Date:

Printed Date: Access Date: Update:

cbruary 20, 2003

14:16:38 16:27:48 15:11:00

20:09:00

Updated by: Mozomu TAKANO

Revised Number: 36

Edition Time: 1375 minutes

Number Items of Detailed Information Number of Paragraphs: Number of Pages: Detailed Information (S)

Number of Lines:

Number of Characters: Number of words:

Number of Characters including Space

17 236

475

-

12655

12691 13148

-7,5



ARCENED AND TO TO

# **EXHIBIT C**

### Partial Translation of Draft Specification

### On page 2, line 1 to page 3, line 6

[Document] Specification

[Title of the Invention] Incombustible Resin Composition Excluding Bromine Compound, and Laminated Plate and Printed. Wiring Board Using the Same

[Claims]

• 7.

[Claim 1] An incombustible resin composition, or a laminated plate or a printed wiring board using the composition, wherein the composition comprising: at least 10 % by volume of metal hydrate; and silicone polymer, and excluding a bromine compound.

[Claim 2] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the metal hydrate is pre-treated with the silicone polymer.

[Claim 3] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the composition is prepared by mixing a processing solution containing a silicone polymer with a metal hydrate, stirring and then mixing resin components to the solution.

[Claim 4] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, wherein the metal hydrate includes aluminum hydroxide.

[Claim 5] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, 2 or 3, wherein the metal hydrate includes aluminum hydroxide.

[Claim 6] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim

1, 2 or 3, wherein the metal hydrate includes calcium hydroxide. [Claim 7] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition of claim 1, 2 or 3, wherein the metal hydrate is aluminum hydroxide. [Claim 8] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-4 and 7, wherein the aluminum hydroxide has particle diameter of 5 micro meter or less in average.

[Claim 9] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-8, wherein the silicone polymer as surface treatment agent has a silanol group which is able to react with a surface of a metal hydroxide.

[Claim 10] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-9, wherein the silicone oligomer has the 2-100 recurring unit of siloxane.

[Claim 11] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-10, wherein the silicone polymer has a phenyl group. [Claim 12] The incombustible resin composition, or a laminated plate or printed wiring board using the composition any one of claims 1-12, wherein the silicone polymer has at least one phenyl group per siloxane unit.

### On page 5, line 4 to page7, line 24

[8000]

A silicone polymer in the present invention contains at least one kind of siloxane unit selected from bifunctional siloxane unit ( $R_2SiO_{2/2}$ ), trifunctional siloxane unit ( $RSiO_{3/2}$ ) (in the formula, R represents an organic group, R groups in the

silicone oligomet may be identical with each other or different.), and tetrafunctional siloxane unit  $(SiO_{4/2})$ . Moreover, the silicone polymer has one functional group or more which reacts with hydroxyl group at the end of it. It is preferable that the degree of polymerization is 2 to 7000, more preferably 2 to 100, particularly preferable the degree of polymerization is  $\frac{2}{2}$  to  $\frac{70}{2}$ . Here, the degree of the polymerization is calculated from the number average molecular weight measured by utilizing calibration curve of the standard polystyrene or polyethylene glycol by its polymer molecular weight (in the case of low degree of polymerization) or gel permeation chromatography.

As the R, an alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or an aromatic group such as phenyl group is preferably selected. However, in order to further enhance the heat resistance, it is more preferable that the ratio of aromatic groups is raised. As the functional group reacting with hydroxyl group, silanol group, alkoxyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, acyloxy group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, halogen such as chlorine or the like except for bromine are listed.

[0009]

A silicone polymer of the invention can be obtained by hydrolyzing and performing the polycondensation of silane compound represented by the following general formula (I).

[Formula 1]

R'nSiX4-n (I)

(In the formula, X represents halogen such as chlorine except for bromine, or -OR, where R represents alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or alkyl carbonyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms, R' represents organic groups such as alkyl group having 1 to 4 pieces of carbon atoms or phenyl group, n denotes an integer of 0 to 2).

[0010]

Silane compounds represented by the general formula (I) are concretely,

4 functionality silane compounds (hereinafter

```
functionality in the silane compound means that it has
functional group having condensation reaction) such as
tetraalkoxy silanes as follows:
   [Formula 2]
         Si(OCH_3)_4, Si(OC_2H_5)_4,
         Si(OC_3H_7)_4, Si(OC_4H_9)_4,
monoalkyl trialkoxy silanes as follows:
   [Formula 3]
         H_3CSi(OCH_3)_3, H_5C_2Si(OCH_3)_3,
         H_3C_3Si(OCH_3)_3, H_9C_4Si(OCH_3)_3,
         H_3CSi(OC_2H_5)_3, H_5C_2Si(OC_2H_5)_3,
         H_7C_3Si(OC_2H_5)_3, H_9C_4Si(OC_7H_5)_3,
         H_3CSi(OC_3H_7)_3, H_5C_2Si(OC_3H_7)_3,
         H_7C_3Si(OC_3H_7)_3, H_9C_4Si(OC_3H_7)_3,
         H_3CSi(OC_4H_9)_3, H_5C_2Si(OC_4H_9)_3,
         H_7C_3Si(OC_4H_9)_3, H_9C_4Si(OC_4H_9)_3,
phenyl trialkoxy silanes as follows:
   [Formula 4]
         PhSi(OCH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, PhSi(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>,
         PhSi(OC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>3</sub>, PhSi(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>3</sub>,
(where Ph represents phenyl group. Hereinafter, referred to
as the same as it is represented.)
monoalkyl triacyloxy silanes as follows:
  [Formula 5]
         (H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiCH<sub>3</sub>, (H<sub>3</sub>CCOO)<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>,
         (H_3CCOO)_3SiC_3H_7, (H_3CCOO)_3SiC_4H_9,
trifunctional silane compounds such as monoalkyl trihalogeno
silanes as follows:
  [Formula 6]
        Cl<sub>3</sub>SiCH<sub>3</sub>, Cl<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>,
        Cl<sub>3</sub>SiC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, Cl<sub>3</sub>SiC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,
Dialkyl dialkoxy silanes as follows:
  [Formula 7]
        (H_3C)_2Si(OCH_3)_2, (H_5C_2)_2Si(OCH_3)_2,
        (H_7C_3)_2Si(OCH_3)_2, (H_9C_4)_2Si(OCH_3)_2,
        (H_3C)_2Si(OC_2H_5)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_2H_5)_2,
        (H_7C_3)_2Si(OC_2H_5)_2, (H_9C_4)_2Si(OC_2H_5)_2,
```

```
(H_3C)_2Si(OC_3H_7)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_3H_7)_2,
       (H_7C_3)_2Si(OC_3H_7)_2, (H_9C_4)_2Si(OC_3H_7)_3,
       (H_3C)_2Si(OC_4H_9)_2, (H_5C_2)_2Si(OC_4H_9)_2,
       (H_7C_3)_2Si(OC_4H_9)_2, (H_9C_4)_2Si(OC_4H_9)_2,
diphenyl dialkoxy silanes as follows:
  [Formula 8]
       Ph_2Si(OCH_3)_2, Ph_2Si(OC_2H_5)_2,
Dialkyl dialkoxy silanes as follows:
  [Formula 9]
       (H_3CCOO)_2Si(CH_3)_2, (H_3CCOO)_2Si(C_2H_5)_2,
       (H_3CCOO)_2Si(C_3H_7)_2, (H_3CCOO)_2Si(C_4H_9)_2, and
bifunctional silane compounds such as alkyl dihalogeno silanes
as follows:
  [Formula 10]
       Cl_2Si(CH_3)_2, Cl_2Si(C_2H_5)_2,
       Cl_2Si(C_3H_7)_3, Cl_2Si(C_4H_9)_2.
       [0011]
```

As a silane compound represented by the general formula (I) of the present invention, any of tetrafunctional silane compound, trifunctional silane compound, bifunctional silane compound or their mixture is appropriately used. In order to enhance the heat resistance, it is preferable to use silane compound having an aromatic group. It is particularly preferable to use phenyl trialkoxy silane compound having a phenyl group and diphenyl dialkoxy silane compound. As a usage volume of the compound having a phenyl group, it is preferable that it is used at the ratio of 5 to 100 mol% with respect to the total silane compound. It is particularly preferable to use it at the ratio of 50 to 100 mol%.



# **EXHIBIT D**

| Property of  |                      | •                    |  |   | An attached<br>required to              | spea                                    | tion, abstr<br>est                      | act, and tig                            | ure are                                 |
|--|----------------------|----------------------|--|---|---|---|---|---|---|
| peparting only   | dential '            | 5 - west for Patent  | Application and Transf   | Pr -                                    | required 10                             |   | Reception N                             | <u>.</u>                                |   |
| 7 \  |                      | 《特許出願依賴              | 書(1) 兼 譲渡証   |   | コケループ以外                                 | 0)/(50)                                 | 受付番号(知的財                                |   |   |
|  |                      | 7) 1117 = 1212       |  |   | 司発明の場合は、<br>『書(2)にも記載し                  |   | 1/2- 26                                 | <i>J ()</i>                             | _                                       |
| 900  | <b>産部</b> 高          |                      | 部数 3部  |   | 出すること。                                  |   | 河 金田                                    | A AM                                    | Reg ]                                   |
|  |                      |                      | <ul><li>部 知的財産部用</li><li>部 データ入力用兼連絡者名</li></ul>   | · (依東                                   | し<br>頂書には、明細書                           | 更約書                                     |   |   |   |
| 12   | (IE                  |                      | 部 評価連絡用兼発明者控   |   | 面を1部添付する                                |   | <b>X</b> /                              | 4                                       | 高野                                      |
| Title格称  | 122664               | Examilian            | In The YOR I CLASSIF   | ★ 計                                     | 発明者は、その                                 | 佐笠を受け                                   | 本権制のを公                                  |   | <b>√</b>                                |
|  |                      |                      | 有是权 伊利尔  |   | 等取扱規則」(規                                |   |   |   |   |
| 23   | Incom                | bustible Resin Com   | position Excluding Bromine   | として                                     | て、当社以外の                                 | 国立 グル                                   | ープ会社の発明                                 | 者は、その特割                                 | 许を受け                                    |
| Compo  | und , ang 1          | aminated Plate and f | trimed Wiring Board Using to   | neる権利                                   | 刊の持分につい                                 | て、当該発                                   | 明者が属するク                                 | ループ会社へ                                  | の「譲渡                                    |
| . 研究問  | 開発   がん              | 发生化是极                | Same Same  |   | する書面」として                                |   | 出致します。                                  |   |   |
| 17/7   | za Subs              | strate Material t    | DE E responsive to envir   | 加代                                      | 所属                                      | 氏名番号                                    | 氏 名(フリ)                                 |   | 譲渡印                                     |
| pics of researc  |                      | 送 □該当(私類元            | A TOTAL TOTA | 発筆明者                                    | St TI                                   | 02010                                   | 多野茶                                     |   | 高                                       |
|  |                      |                      |  | Hair                                    | 12017C                                  | 03969                                   | 内線作品                                    | 2) 50%                                  | 是到                                      |
| 道用题<br>Produ   |                      | コード EOZC )裏          | 面から記入  | Invent                                  | or<br>T                                 | 78677                                   | THE EST                                 |   | (-11)                                   |
| 1 1  | 特許分類                 |                      |  | 共                                       |   | 1772                                    | li la at                                | /                                       | 1                                       |
| (何):B  | 29C33/00)            | 200 Mar 27 600 700   | EF 44. 40  | 同                                       | "                                       | 06723                                   | NON UNIT                                | 2/77/1/ 20                              | THE STATE OF                            |
| 権利   | 帰属先                  | 事業所 が 化 労用負担部門コード    | 事業部 ( )裏面から記入  | 発                                       |   | 1                                       | MOZOMU TA                               | KANO                                    |   |
| 発内容を   | ・外部に発表               | する場合の外部発表日           |  | 明者气                                     |   | K                                       | Tomio Fuk                               | UDA                                     |   |
|  |                      |                      | 年 月 日  | CO-Inv                                  | rento/                                  |   | Masato Mi                               | VATA                                    |   |
| <b>7</b> 1   | •                    |                      | 発行される場合は、発行日)  |   |   |   |   | A                                       |   |
| 欄 *発表  |                      | 講演、雑誌、新聞、力           | タログ、販売、展示、外注   | , 4                                     |   | σ±8 Δ ± 1Δ                              | t. 755 511 1001 t                       |   |   |
| 1. F. 1  |                      | □有→□先にした             | <b>州顧(</b> – )   |   | F与率は、均等<br>f合計が 100%!                   |   |   | さみで、社内外                                 | · 全発明                                   |
| 国内侵  | 先権                   | ,                    | して、この出願を行う。  |   | 社及び国立                                   |   |   | の欄に記入、押                                 | 門下さ                                     |
| 主張四  |                      | この出願を基礎にし            | て後日、別の出願を行   |   | 。それ以外の                                  |   | <b>寺許出願依頼書</b>                          | (2)の所定欄に                                | 記入し                                     |
| - D P  | SAB ( - 89 / 7 / 7   | う。<br>)深い自社の特許出      |  | 7                                       | 書に添付下さ                                  | / <b>`</b>                              |   | <u> </u>                                |   |
| 1 1  |                      | か月以内の関連出願            | ·····································  | • • • • • • • • • •                     |   |   |   | • | • |
| 1 1  | ばその受付す               |                      | 出願公開が迫っているもの   | の出願                                     | 番号を記入→                                  |   |   | • |   |
|  |                      | を出願依頼する予定            | □無 127有(時期 <i>円</i> //   | 2/F                                     | ,件数                                     | 2 14                                    | F                                       |   | )                                       |
| この発  | 明に関係の                | 深い自社の文献              |  | • |   |   | ••••                                    | • |   |
| 他社の  | 類似技術                 |                      | 特許番号、文献名等  | 7.7.77                                  | D                                       |   |   |   |   |
| (この  | 機に記入の                | ないものは先行技             | 特爾平11-217  | 40. f.                                  | 7                                       | • |   |   |   |
|  | :をしていな<br>:評価を B2    | いものとみなし、<br>とする。)    |  | 索式,                                     | • | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·   |   | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·   |   |
|  |                      |                      | PATOUS, PS   | CAR                                     | CH                                      |   |   | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·   |   |
| 審査請  |                      | ない 12希望する<br>品・技術の改良 |  | <b>辽希望</b> 。                            |   |   | <b>FAR</b> -                            |   | )                                       |
| 課題の  | 口業界、                 | 学会の有力課題              | 発明の性質   <b>四</b> 規在製品・<br>侵害発見の難度   <b>四</b> 困難  |   | 関する発明 L<br>易(確認方法                       | 新事業製品                                   | ・技術の発明                                  | □先行アイデ                                  | ア発明                                     |
| 重要性  | ∶│□新しい<br>│□その他      | 課題の発見                | 課長コメント   | 1                                       |   | 9106508.0                               |   | Test mention in our way of the          |   |
| 佐 技術的  |                      | <br>□ 実験 レベル         |  |   |   |   |   |   |   |
| 佐頼元上長記入欄<br>  大東<br>  大<br>  大<br>  大<br>  大<br>  大<br>  大<br>  大<br>  大 | □単純で                 | レベル 口自明              | 競合他社状况 2   |   | ·\··2·=                                 |   |   |   |   |
| 夏  |                      | 必然的<br>規格の先取り        | 757421756 130K   | 1.2.上孩                                  | AL BY 7                                 | なるな                                     | 2. YEALIA.                              | 73.3.1                                  | 於研 )                                    |
| 5 性  |                      | 回避が難しい<br>回避が可能      | 課長評価 DA (外国  |   |   |   | 請求を行う予定                                 |   | 高野                                      |
|  | □材料·                 | 技術の巧みな転用             | ■ □ B 2 (<br>部長職コメント (課長評価がA   |   | 求の予定なし)                                 | □□(公                                    | 開技報に掲載)                                 |   | (3)(4,1)                                |
| 製品化  | 口その他<br>  <b>日</b> 有 | → □試作段階              |  | の場合は                                    | 必ず記入)                                   |   |   |   | 戶                                       |
| 計画   | □無                   | → <b>囚</b> 採用予定      |  |   |   |   | • |   | ,                                       |
| 特記事  | 項                    |                      |  |   |   |   |   |   |   |
|  |                      |                      |  |   |   |   |   |   |   |
| ↑ 処理区  | 分(知財部評               | 価) 図A(外国出願           | を行う予定) 口B1(審査請   | 求を行う                                    | · 予定) □ B 2 (                           | 審査請求の                                   | 予定なし) □ D                               | 公開技報に掲載                                 | 载)                                      |
| ~~ 45  | 出願 口共                | 顎 (相手方               |  |   |   |   | ) PCT                                   | THE SEC                                 |   |
| 財入 備考 部欄   |                      |                      |  |   |   |   |   |   | 争                                       |
|  | ·····                | •••••                |  |   |   |   |   | \ ፮,/                                   | <b>43</b> (2)                           |
| <u> </u>   | ·                    |                      |  |   |   |   |   |   | 門                                       |